

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

(11) Veröffentlichungsnummer:

0 221 338
A1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 86113390.8

(51) Int. Cl.⁴: C 08 L 67/02
C 08 K 3/36

(22) Anmeldetag: 29.09.86

(30) Priorität: 09.10.85 DE 3535985

(71) Anmelder: BAYER AG
Konzernverwaltung RP Patentabteilung
D-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
13.05.87 Patentblatt 87/20

(72) Erfinder: Zabrocki, Karl, Dr.
Edelfalter 33
D-4044 Büttgen(DE)

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE FR GB IT

(72) Erfinder: Reinking, Klaus, Dr.
Robert-Stolz-Strasse 16 b
D-5632 Wermelskirchen(DE)

(72) Erfinder: Köhler, Karl-Heinz, Dr.
Buschstrasse 165
D-4150 Krefeld(DE)

(72) Erfinder: Lange, Ralf, Dr.
Bethelstrasse 19
D-4150 Krefeld 1(DE)

(54) Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen.

(57) Durch Zusatz von gemahlenem Quarz und/oder gemahlenem Cristobalit zur thermoplastischen Polyestern lassen sich Mischungen erhalten, welche die typischen Vorteile mineralgefüllter Polyester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt.

EP 0 221 338 A1

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 5090 Leverkusen, Bayerwerk
5 Konzernverwaltung RP
Patentabteilung Pv/m-c

10

Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen

15

Die Erfindung betrifft thermoplastisch verarbeitbare Polyester, die gemahlenen Quarz und/oder gemahlenen Crystobalit als Füllstoff enthalten, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen, vornehmlich 20 für den Spritzguß.

Mit nicht faserförmigen Mineralien gefüllte thermoplastische Polyester sind als Werkstoffe in den Bereichen Elektrotechnik und Elektronik sowie im Fahrzeugbau zur Herstellung verschiedenster Formteile im Einsatz. Hauptvorteil derartiger Werkstoffe sind ihre hohe chemische und 25 thermische Beständigkeit sowie die leichte Verarbeitbarkeit z.B. im Spritzgußverfahren.

30 Gegenüber ungefüllten und mit faserförmigen anorganischen Füllstoffen, z.B. Glasfasern, ausgerüsteten Polyestern zeichnen sich mineralgefüllte Polyester durch hervorragenden Oberflächenglanz, hohe Kriechstrom- und Lichtbogenfestigkeit sowie geringen Verzug beim Erstarren des Formteils aus.

Le A 24 068-EP

- 5 Als nicht faserförmige mineralische Füllstoffe wurden schon die unterschiedlichsten Materialien verwendet, beispielsweise Talk (DE-OS 20 51 331, 20 51 333), Dolomit (EP-A 57 161), Novaculit (US-PS 37 40 341, 37 45 140, 40 18 738), Kaolin, Glimmer, Aluminiumoxid, Silicagel
10 (JP-PS 15 191/69).

Den genannten Vorteilen, die mineralgefüllte Polyester mit sich bringen, steht der Nachteil des Zähigkeitsverlusts gegenüber. Durch Verwendung möglichst feinteiliger Füllstoffe kann man zwar versuchen, diesen Effekt möglichst gering zu halten; vermeiden ließ er sich bis jetzt jedoch noch nicht.

20 In der US-PS 37 40 371 wird erklärt, weshalb Novaculit-gefüllte Polyester bessere mechanische Eigenschaften als mit anderen Mineralien gefüllte Polyester besitzen: Erstens erlaubt die hydrophile Oberfläche einen festeren Verbund zwischen Füllstoff und Polyester; zweitens werden durch die Abwesenheit scharfer Kanten beim kryptokristallinen Novaculit Spannungsspitzen an der Grenzfläche Füllstoff/Polyester vermieden. Dies ist aber bei der spröden Natur teilkristalliner Polyester besonders wichtig.

30 Es wurde nun überraschenderweise gefunden, daß man Polyester erhält, welche die Vorteile mineralgefüllter Polyester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt, wenn man als Füllstoff gemahlenen Quarz und/oder gemahlenen Cristobalit einsetzt, dessen bzw. deren Teilchendurchmesser einen bestimmten Wert nicht überschreitet.

35

Le A 24 068

5 Gegenstand der Erfindung sind also Mischungen aus

A) 20 bis 80 Gew.-%, vorzugsweise 40 bis 75 Gew.-%,
thermoplastischem Polyester,

10 B) 5 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 20 bis 50 Gew.-%,
mineralischem Füllstoff,

C) 0 bis 30 Gew.-%, vorzugsweise 0 oder 10 bis
15 25 Gew.-%, eines Acrylat- oder Butadienkautschuks,

D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und

E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,

20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Komponen-
ten A bis E beziehen,

dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein gemahlener
Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit ist, wovon min-
25 destens 50 Gew.-% einen Teilchendurchmesser von höchstens
2,5 µm besitzen.

Thermoplastische Polyester A im Sinne der Erfindung sind
Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder
30 ihren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. Dimethylestern oder
Anhydriden) und aliphatischen, cycloaliphatischen, arali-
phatischen oder aromatischen Diolen.

Bevorzugte Polyester A lassen sich aus Terephthalsäure
35 (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten) und Alkandiolen

mit 2 bis 10 C-Atomen nach bekannten Methoden herstellen
5 (Kunststoff-Handbuch, Bd. VIII, S. 695 ff, Carl Hanser
Verlag, München 1973).

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate A enthalten mindestens
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die Di-
10 carbonsäurekomponente, Terephthalsäurereste und mindestens
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die
Diolkomponente, Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-
reste.

15 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben
Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol-% Reste anderer aro-
matischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis
14 C-Atomen und/oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4
bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure,
20 Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, Diphenyl-
4,4'-dicarbonsäure, Bernstein-, Adipin-, Sebacinsäure,
Cyclohexandiessigsäure.

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben
25 Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-resten bis zu 20 Mol-%
anderer aliphatischer Diole mit 3 bis 21 C-Atomen oder
cycloaliphatischer Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten,
z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3,
Neopentylglykol, Pentan-diol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclo-
30 hexan-dimethanol-1,4, 3-Methylpentandiol-2,4, 2-Methyl-
pentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3 und -1,5,
2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexan-
diol-2,5, 1,4-Di-(B-hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-
hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetra-

5 methyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(3- β -hydroxyethoxyphenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS 24 07 674, 24 07 776, 27 15 932).

10 Die Polyalkylenterephthalate A können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, wie sie z.B. in der DE-OS 19 00 270 und der US-PS 36 92 744 beschrieben sind, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit. Es ist ratsam, nicht mehr als 1 Mol-% des Verzweigungsmittels, bezogen auf die Säurekomponente, zu verwenden.

20 Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate A, die allein aus Terephthalsäure oder deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind.

25 Die als Komponente A vorzugsweise verwendeten Polyethylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Intrinsic-Viskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,3 dl/g, insbesondere 0,6 bis 1,2 dl/g, und die als Komponente A verwendeten Polybutylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Intrinsic-Viskosität von 0,7 bis 1,6 dl/g, vorzugsweise 0,8 bis 1,3 dl/g, insbesondere 0,8 bis 1,05 dl/g, jeweils gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C.

30 Will man als Polyesterkomponente A Polyethylenterephtha-

35

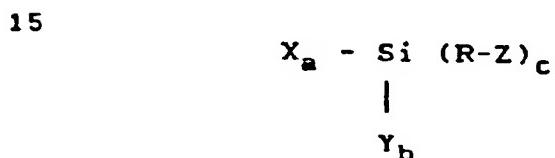
le A 24 068

- 5 lat/Polybutylenterephthalat-Mischungen einsetzen, so wählt
man vorzugsweise Polyethylenterephthalate mit einer In-
trinsic-Viskosität von 0,65 bis 0,9 dl/g und Polybutylen-
terephthalate mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,8 bis
1,4 dl/g und Polyethylenterephthalat/Polybutylenterephtha-
lat-Mischungsverhältnisse von 90:10 bis 10:90, vorzugswei-
se von 30:70 bis 90:10 (bezogen auf Gewicht). Anstelle von
Polyestermischungen lassen sich mit dem gleichen Erfolg
auch die entsprechenden Copolyester einsetzen.
- 10 15 Im Zusammenhang mit dem gemahlenen Quarz B bedeutet
"Quarz" nicht allgemein Siliciumdioxid; erfindungsgemäß
werden mit "Quarz" gemäß der Bedeutung im engeren Sinne
die beiden kristallinen Siliciumdioxid-Modifikationen α -
und β -Quarz - nicht aber glasige oder amorphe, also nicht
kristalline, Materialien - bezeichnet.
- 20 25 Die hochfeinen Produkte B erhält man durch Mahlen von ge-
reinigten, gegebenenfalls thermisch umgewandelten, Quarz-
und Cristobalitsanden, z.B. in Rohrmühlen, und anschlie-
ßende Teilchengrößen-Faktionierung, z.B. über Windsich-
ter. Der gemahlene Quarz bzw. Cristobalit besteht zu min-
destens 99 Gew.-%, vorzugsweise zu mindestens 99,5 Gew.-%,
aus Siliciumdioxid. Er ist - im Gegensatz zu Novaculit -
scharfkantig und splitterförmig. Mineralogisch gesehen,
gehört er zu den kristallinen Siliciumdioxid-Modifika-
tionen, nicht zu den kryptokristallinen, wie z.B. Flint,
Novaculit und verschiedene Schmucksteine, vgl. z.B.
Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie 21 (4.
Aufl.), 440, Verlag Chemie, Weinheim 1982.
- 30 35 Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal zwischen Quarz und
Novaculit ist die bei Quarz etwa doppelt so hohe Pack-

Le A 24 068

5 ungsdichte (siehe hierzu Katz u. Milewski, Handbook of Fillers and Reinforcements for Plastics, van Nostrand 1978, S. 144-154). Der erfahrungsgemäß zu verwendende Quarz besitzt vorzugsweise eine Packungsdichte von mindestens 2,4 kg/dm³.

10 Der gemahlene Quarz bzw. Crystobalit B kann geschlichtet oder ungeschlichtet eingesetzt werden; Schlichte führt zu etwas höheren Zähigkeiten. Bevorzugte Schlichten sind Silane der Formel



20 worin

X eine hydrolysierbare Gruppe, vorzugsweise C₁-C₄-Alkoxy oder ein H-Atom,

25 Y ein Wasserstoffatom oder einen einwertigen C₁-C₆-Kohlenwasserstoffrest, vorzugsweise Vinyl oder Phenyl,

R einen zweiwertigen C₁-C₂₀-Kohlenwasserstoffrest, vorzugsweise Propylen,

30 Z eine funktionelle Gruppe, vorzugsweise Amino, Glycidoxy, (Meth-)Acryloyl,

a,c eine ganze Zahl von 1 bis 3,

35 b Null, 1 oder 2,

Le A 24 068

5 a + b + c = 4

bedeuten.

Vorzugsweise sind a = 3, b = 0 und c = 1.

10 Als Schlichte bevorzugte Silane sind z.B.

δ-Aminopropyltriethoxysilan,
δ-Aminopropylphenyldimethoxysilan,
δ-Aminopropyltrimethoxysilan,
15 δ-Glycidoxypropyltrimethoxysilan,
δ-Methacryloxypropyltrimethoxysilan,
δ-Vinyltrimethoxysilan.

20 Zwar kann man die Schlichte direkt beim Mischen der Komponenten A bis E zusetzen, jedoch ist es bevorzugt, sie während oder nach dem Mahlen auf die Quarz- bzw. Cristobalitoberfläche aufzubringen.

25 Als Komponente C zu verwendende Acrylat- und Butadienkautschuke werden in der Literatur beschrieben; vgl. z.B. DE-OS 16 94 173, 22 48 242, 23 10 034, 23 57 406, DE-PS 24 44 584 = US-PS 40 22 748, DE-OS 27 26 256 = US-PS 40 96 202, US-PS 38 08 180, EP-A 56 243.

30 Bevorzugte Kautschuke C besitzen eine Glasübergangstemperatur von unter -30°C und umfassen Copolymerivate - insbesondere Propfcopolymerivate - mit kautschukelastischen Eigenschaften, die im wesentlichen aus mindestens 2 der folgenden Monomeren erhältlich sind: Butadien-1,3, Styrol, 35 Acrylnitril und (Meth)-Acrylsäureester mit 1 bis 18 C-Atomen in der Alkoholkomponente; also Polymerivate, wie sie z.B. in "Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl),
Le A 24 068

5 Bd. 14/1, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406
und in C.B. Bucknall, "Toughened Plastics", Appl. Science
Publishers, London 1977, beschrieben sind.

Besonders bevorzugte Polymerisate C sind Ppropfpolymeri-
sate.

10

Bevorzugte Ppropfpolymerisate C besitzen mittlere Teil-
chendurchmesser d_{50} von 0,05 bis 1, vorzugsweise von 0,1
bis 0,8, insbesondere von 0,2 bis 0,6 μm .

15

Der mittlere Teilchendurchmesser d_{50} ist der Durchmesser,
oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teil-
chen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugen-Messungen
(W. Scholtan, H. Lange, Kolloid. Z. und Z. Polymere 250
(1972), 782-796) oder mittels Elektronenmikroskopie und
anschließende Teilchenauszählung (G. Kämpf, H. Schuster,
Angew. Makromolekulare Chemie 14, (1970), 111-129) be-
stimmt werden.

20

25

Die Ppropfpolymerisate C sind vernetzt und haben Gelgehal-
te von mindestens 50 Gew.-%, vorzugsweise mindestens
80 Gew.-% und insbesondere von mindestens 90 Gew.-%, be-
zogen auf Ppropfpolymerisat C.

30

Der Gelgehalt der vernetzten Dienkautschuke wird bei 25°C
in Toluol, der Gelgehalt der vernetzten Acrylatkautschuke
bei 25°C in Dimethylformamid bestimmt (M. Hoffmann, H.
Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme
Verlag Stuttgart 1977).

35

Bevorzugte Ppropfpolymerisate C sind Ppropfpolymerisate
von 15 bis 60, vorzugsweise 20 bis 50, insbesondere 25 bis
40 Gew.-% wenigstens eines Vinyl- oder Vinylidenmonomeren
Le A 24 068

- aus der Reihe Styrol, α -Methylstyrol, Acrylnitril, C₁-C₈-Alkylacrylat, C₁-C₈-Alkylmethacrylat, Hydroxy-C₂-C₈-alkyl(meth)acrylat, Epoxy-C₂-C₈-alkyl(meth)acrylat auf 40 bis 85, vorzugsweise 50 bis 80, insbesondere 60 bis 75 Gew.-% teilchenförmigem vernetztem Dien- oder Acrylatkautschuk, jeweils bezogen auf Ppropfpolymerisat C.
- 10 Bevorzugte Ppropfmonomere sind Methylmethacrylat sowie Mischungen aus Styrol und Methylmethacrylat und Mischungen aus Styrol und Acrylnitril.
- 15 Bevorzugte Dienkautschuke sind vernetzte Homo- und/oder Copolymerisate aus konjugierten C₄-C₆-Dienen. Bevorzugtes Dien ist Butandien-1,3. Die Diencopolymerisate können neben den Dienresten bis zu 30 Gew.-%, bezogen auf Dien-copolymerisat, Reste anderer ethylenisch ungesättigter Monomerer, wie z.B. Styrol, Acrylnitril, Ester der Acryl- oder Methacrylsäure mit einwertigen C₁-C₄-Alkoholen, wie z.B. Methylacrylat, Ethylacrylat, Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat, enthalten.
- 20 25 Die Herstellung der Dienkautschuk-Ppropfgrundlage und der daraus hergestellten Ppropfpolymerisate wird z.B. in "Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl), Bd. 14/1, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406, sowie in Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, 4. Auflage Bd. 19, Verlag Chemie, Weinheim, 1981, S. 279 bis 284, beschrieben.
- 30 Bevorzugte Ppropfgrundlagen auf Basis Acrylatkautschuk sind Polymerisate, die durch Polymerisation von C₁-C₈-
- 35

Le A 24 068

Alkylacrylaten erhalten werden. Die Polymerisate können
5 auch Copolymerisate der Acrylsäureester mit bis zu
40 Gew.-%, bezogen auf Copolymerisat, anderer Vinylmono-
merer, wie Styrol, Acrylnitril, Methylmethacrylat, Vinyl-
ester, Vinylether, sein.

10 Die Acrylatkautschuke sind vernetzt.

Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere mit mehr als
einer copolymerisierbaren Doppelbindung sind Ester unge-
sättigter C₃-C₁₂-Monocarbonsäuren und ungesättigter ein-
15 wertiger C₂-C₁₂-Alkohole oder gesättigter C₂-C₂₀-Polyole
mit 2 bis 4 OH-Gruppen, wie z.B. mehrfach ungesättigte
heterocyclische Verbindungen, wie Trivinyl-, Triallylcyan-
urat und -isocyanurat; insbesondere Triallylcyanurat;
polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinyl-
20 benzole; aber auch Triallylphosphat.

Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat,
Ethylenglycoldimethacrylat, Diallylphthalat und hetero-
cyclische Verbindungen, die mindestens drei copolymeri-
25 sierbare ethylenisch ungesättigte Doppelbindungen aufwei-
sen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cycli-
schen Monomeren Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat,
30 Trivinylcyanurat, Tris-acryloylhexahydro-s-triazin, Tri-
allylbenzole.

5 Die Menge der vernetzenden Monomeren beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage.

10 Bei cyclischen, vernetzenden Monomeren mit mindestens drei ethylenisch ungesättigten Doppelbindungen ist es vorteilhaft, nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage, zu verwenden.

15 Die erfindungsgemäßen Mischungen können Glasfasern D enthalten. Dadurch wird die Kerbschlagzähigkeit erhöht; mit zunehmendem Glasfasergehalt können aber die spezifischen Vorteile mineralgefüllter Polyester, wie Oberflächenglanz und Verzugsarmut, etwas in den Hintergrund treten.

20 Beispiele für übliche Hilfsstoffe E sind Nukleier- und Entformungsmittel, Stabilisatoren gegen thermischen und UV-Abbau, Pigmente, Farbstoffe etc.

25 Das Mischen der Komponenten kann auf üblichen Kunststoffverarbeitenden Aggregaten, wie Knetern oder Schneckenextrudern, durchgeführt werden. Die Mischbedingungen wird man so wählen, daß die Viskosität der polymeren Komponenten nicht oder kaum abfällt. Selbstverständlich sind auch Vorgemische der einzelnen Komponenten zu verwenden.

30 Weiterer Gegenstand der Erfindung ist also ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen durch Mischen der Komponenten, vorzugsweise bei Temperaturen von 250 bis 320°C.

35

Le A 24 068

Die Herstellung von Formkörpern mittels Spritzguß ist be-
5 kannt (z.B. E.J. Rubin, *Injection Molding Theory and Practice*, Wiley Interscience, 1972); geeignete Masse-temperaturen liegen bei 250 bis 270°C, bevorzugte Werkzeugtemperaturen bei 80 bis 130°C.

10 Weiterer Gegenstand ist also die Verwendung der erfindungsgemäßen Mischungen zur Herstellung von Formkörpern, vorzugsweise durch Spritzguß.

15 Aus den erfindungsgemäßen Mischungen lassen sich die verschiedenensten Gegenstände herstellen, z.B. Vergaserteile, Zündverteiler, Elektrobauteile, Gehäuseteile, Lüftungsgitter, Lampenfassungen.

20

25

30

35

Le A 24 068

T a b e l l e 1

Beisp. Mineralart	Menge (Gew.-%, bez. auf Gesamt- mischung)	Schlagzähig- keit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Kerbbruchlag- zähigkeit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Zug-E-Modul (DIN 53460) [MPa]	Vicat B [°C]	Biege-E- Modul [MPa]
1 unbeschichtetes Quarzmehl, Teilchengrößen: >50 % sind <2,5 µm	20	100	1,6	3810	171	3440
2 mit Epoxisilan beschichtete Quarzmehl; Teilchengrößen: >70 % sind <2,5 µm	40	83	1,6	5650	193	4860
3 mit Aminosilan beschichtete Quarzmehl; Teilchengrößen: >70 % sind <2,5 µm	40	100	1,6	5710	191	4900
4 mit Epoxisilan beschichtete Quarzmehl; Teilchengrößen: >70 % sind <2,5 µm	40	92	1,6	5770	193	5050
5 mit Epoxisilan beschichtete Cristobalitmehl; Teilchengrößen: >65 % sind <2,5 µm	40	90	1,6	5900	191	5180

- 14 -

5 Beispiele und Vergleichsversuche

Ein Polybutylenterephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,93 dl/g und ein Polyethylen terephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,77 dl/g wurden im Gewichtsverhältnis 60:40 vermischt und bei der Compoundierung auf einem Doppelwellenextruder mit kleinen Mengen Stabilisator, Trennmittel und Kristallisationsbeschleuniger sowie den in Tabelle 1 und 2 angegebenen Mengen verschiedener anorganischer Zuschlagsstoffe versetzt. Zusätzlich sind die Prüfdaten aus den Formmassen hergestellter Probekörper angeführt. Hieraus wird die Überlegenheit der Systeme mit gemahlenem Quarz und Cristobalit ersichtlich.

20

25

30

35

le A 24 068

T a b e l l e 2

Vergl. Mineralart Versuch	Menge (Gew.-%, bez. auf Gesamt- mischung)	Schlagzähig- keit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Kerbzähig- keit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Zug-E-Modul (DIN 53455) [MPa]	Vicat B [°C]	Biege-E- Modul [MPa]
a Aminosilan-behandeltes calciniertes Kaolin Teilchengröße: 50 % < 2 µm	20	91	1,5	3960	182	3560
b	40	33	1,5	6630	198	5800
c Epoxisilan-behandelter Wollastonit, Teilchen- größe: 63 % < 2,5 µm	40	41	1,6	5870	186	5190
d unbehandeltes Talkum Teilchengröße: 69 % < 2 µm	40	14	1,8	8880	191	8690
e unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 80 % < 5 µm Durchschnittl.TG: 2,7µm	30	15	6,1	4890	178	4240
f unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 100 % < 5 µm Durchschnittl.TG: 2,7µm	30	61	2,3	5010	183	4240
- 16 -						

5 Patentansprüche:

1. Mischungen aus

A) 20 bis 80 Gew.-% thermoplastischem Polyester,

10

B) 5 bis 50 Gew.-% mineralischem Füllstoff,

C) 0 bis 30 Gew.-% eines Acrylat- oder Butadien-
kautschuks,

15

D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und

E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,

20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Kom-
ponenten A bis E beziehen,

dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein ge-
mahlenes Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit
25 ist, wovon mindestens 50 Gew.-% einen Teilchendurch-
messer von höchstens 2,5 µm besitzen.

2. Mischungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß sie 40 bis 75 Gew.-% Komponente A enthalten.

30

3. Mischungen nach Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekenn-
zeichnet, daß sie 20 bis 50 Gew.-% Komponente A ent-
halten.

35

- 5 4. Mischungen nach Ansprüchen 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß sie 10 bis 25 Gew.-% Komponente C enthalten.
- 10 5. Mischungen nach Ansprüchen 1-4, dadurch gekennzeichnet, daß der thermoplastische Polyester aus der Reihe Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat, deren Mischungen und Poly(ethylen/butylenterephthalat) ausgewählt ist.
- 15 6. Verfahren zur Herstellung der Mischungen nach Ansprüchen 1 bis 5 durch Mischen der Komponenten bei Temperaturen von 250 bis 320°C.
- 20 7. Verwendung der Mischungen nach Ansprüchen 1-5 zur Herstellung von Formkörpern.

25

30

35

Le A 24 068



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0221338

Nummer der Anmeldung

EP 86 11 3390

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE

Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betritt Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)
D, X	US-A-4 018 738 (H.L.RAWLINGS) * Patentansprüche 1-12; Spalte 3, Zeilen 7-40 *	1-7	C 08 L 67/02 C 08 K 3/36
X	--- CHEMICAL ABSTRACTS, Band 85, nr. 18, November 1976, Seite 55, Zusammenfassung nr. 125139p, Columbus, Ohio, US; & JP-A-76 81 849 (TEIJIN) 17. Juli 1976 * Insgesamt *	1-7	
A	--- PATENTS ABSTRACTS OF JAPAN, Band 7, nr. 108 (C-165)[1253], 11. Mai 1983; & JP-A-58 29 858 (NITTO DENKI) 22-02-1983	1	
A	--- GUMMI, ASBEST, KUNSTSTOFFE, Band 36, nr. 12, Dezember 1983, Seiten 658-667, A.W.Guntner Verlag, Stuttgart, DE; D.SKUDELNY et al.: "Mineralische Füllstoffe aus Quarz, Cristobalit und Quarzgut" * Seite 658, Absatz 3.3; Seite 663, Absatz 4 - Seite 664 *	1	RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int. Cl. 4) C 08 L C 08 K
D, A	--- EP-A-0 056 243 (BAYER) * Patentansprüche 1-12; Seite 7, Zeilen 1-8 *	1-7	

Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.

Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer
DEN HAAG	15-01-1987	DECOCKER L.

KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE		E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmelde datum veröffentlicht worden ist
X	von besonderer Bedeutung allein betrachtet	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument
Y	von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument
A	technologischer Hintergrund	
O	nichtschriftliche Offenbarung	
P	Zwischenliteratur	
T	der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument